

化学試薬における放射性核種汚染の実測値による評価 -海水/陸水試料への共沈法の適用-

井上睦夫・小村和久

〒923-1224 石川県能美市 金沢大学 LLRL, K-INET

M. Inoue, K. Komura: Determination of radionuclides in chemical reagents : Application of coprecipitation method to sea/environmental waters

1. はじめに

極低バックグラウンド γ 線測定法の適用により、深層海水や陸水試料でも天然放射性核種 (^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{234}Th など)、人工放射性核種 (^{137}Cs) や宇宙線生成核種 (^7Be) が地球化学的トレーサとして利用できるようになった。また原子力発電所事故や海洋への放射性廃棄物の不法投棄に対する極微弱放射性核種 (例えば ^{60}Co , ^{137}Cs) の汚染モニタリングにも有効である。一方、 γ 線測定のためのこれら核種の分離過程、特に微弱核種の測定や試料量が制限される場合、さらには共沈法の組み合わせによる多核種同時測定では、化学試薬由来の汚染が心配される。それに対し、試薬中の放射性核種は、通常の化学的分析法では検知できないほど微量であり、Ba試薬のRa汚染などを除き、実測例はほとんどない。

本研究では、共沈法に使用される化学試薬を中心に、放射性核種の汚染程度を、極低バックグラウンド γ 線測定法の適用により、実測値から評価する。

2. 測定試薬

海水試料からのRaの分離には、主にBa (Pb) キャリアを用いた BaSO_4 (PbSO_4) 共沈法が、U, ThおよびBeの分離には、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法が、またCsにはリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) (またはAMP/Cs compound) による沈殿濃集法が利用されてきた。本研究では、以下に示すキャリアの候補を測定試料とした。

- 1) Baキャリア : $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, $\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, BaSO_4 などのBa試薬、重晶石粉末 (BaSO_4)、重晶石を原料の一部とする医療用X線造影剤 (BaSO_4)
- 2) Pbキャリア : PbCl_2 , $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$, Pb_3O_4 , Pb粉末などの鉛化学試薬および旧金沢城内の建物の鉛瓦を加工した古い鉛ブロック
- 3) その他のキャリア試薬 : $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, AMP, CsCl

3. 極低バックグラウンド γ 線測定

全ての試料の測定は、尾小屋地下測定室 (水深換算270 m) に設置した低バックグラウンド仕様の井戸型、同軸型または平板型Ge検出器、計9台を使用した。 γ 線測定は2-5日間おこなった。

4. 測定結果

- 1) Baキャリア

Ba化学試薬においては、化学的純度に関わらず、化学的性質の類似性を反映する大きなRaの汚染(^{226}Ra , 6-90 mBq/g-Ba; ^{228}Ra , 1-7 mBq/g-Ba)が確認された。造影剤については、製造会社ごとに、さらに同一商品名でもロットにより異なるが、 ^{226}Ra で1.2-17 mBq/g-Ba, ^{228}Ra で0.2-0.8 mBq/g-Baと汚染程度は小さかった。さらに、重晶石に関しては、 ^{226}Ra で0.7-1.5 mBq/g-Ba, ^{228}Ra で0.2-0.5 mBq/g-Baと汚染程度は著しく小さい。生成年代が古い(大部分の ^{226}Ra が壊変)重晶石やそれを主原料とする造影剤がBaキャリアとして有効である。ただし難溶性の BaSO_4 は、 Na_2CO_3 , K_2CO_3 分解により酸に可溶な BaCO_3 にする必要がある。

2) Pbキャリア

全てのPb化学試薬において、 ^{210}Pb が顕著に検出された(0.4-3.3 cph/g-Pb; 相対効率36%井戸型Ge; 自己吸収の影響により正確な濃度の見積もりは困難)。旧金沢城の古いPbでは、 ^{210}Pb はバックグラウンドレベル(大部分の ^{210}Pb が既に壊変)であった。

3) 他のキャリア試薬

CsCl試薬において、 ^{134}Cs (0.03 mBq/g-Cs), ^{137}Cs (0.03 mBq/g-Cs), ^{234}Th (0.7 mBq/g-Cs)が検出された。 ^{134}Cs は試薬中の ^{133}Cs と環境中性子との反応生成核種、 ^{137}Cs , ^{234}Th は試薬の原料本来の汚染または製造過程における汚染が考えられる。

5. まとめ

重晶石および古い鉛中の ^{226}Ra , ^{210}Pb 濃度はそれぞれBa, Pb化学試薬に比べ著しく小さかった。これは化学的純度よりむしろ目的核種の壊変程度を反映した。他の試薬では、その原料本来の汚染や環境中性子との反応生成核種を反映する汚染がみられる場合も一部にみられたが、通常の化学分離過程における使用では全く問題のないレベルであった。極微弱放射性核種の測定において、より信頼性の高い値を得るためには、試薬ごとに汚染の確認がのぞまれる。互いに妨害にならないキャリアを利用した簡便な共沈法の組み合わせにより、多核種同時 γ 線測定が可能となる。